

⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

⑪ N° de publication :

2 763 693

(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

⑫ N° d'enregistrement national :

98 06394

⑬ Int Cl⁶ : G 01 N 35/00, B 01 J 19/24, G 01 N 1/28

⑭

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

⑮ Date de dépôt : 20.05.98.

⑯ Priorité : 22.05.97 US 00047636.

⑰ Date de mise à la disposition du public de la
demande : 27.11.98 Bulletin 98/48.

⑱ Liste des documents cités dans le rapport de
recherche préliminaire : *Ce dernier n'a pas été
établi à la date de publication de la demande.*

⑲ Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑴ Demandeur(s) : EXXON PRODUCTION RESEARCH
COMPANY SOCIÉTÉ DE DROIT DE L'ÉTAT DU
DELAWARE — US.

⑵ Inventeur(s) : HUANG WUU LIANG et OTTEN
GLENN A.

⑶ Titulaire(s) :

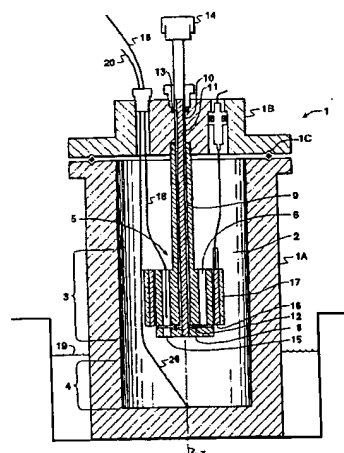
⑷ Mandataire(s) : RINUY SANTARELLI.

⑸ REACTEUR POUR ANALYSE D'ÉCHANTILLONS MULTIPLES.

⑹ L'invention concerne un réacteur (1) pour analyses.

Ce réacteur comprend une structure de support entourant une région avec une zone chaude (3) et une zone de désactivation (4), un dispositif de chauffage de la zone chaude (3), un dispositif de refroidissement de la zone de désactivation (4), un portoir d'échantillon (5) renfermant une pluralité d'échantillons de corps réactionnels, et un mécanisme de libération d'échantillon.

Application: analyse d'échantillons multiples en faisant varier les conditions de pression, de température et de temps, tous les échantillons distincts dans un seul essai étant exposés aux mêmes profils de température et de pression, mais pouvant être désactivés indépendamment et sélectivement à des temps différents.



FR 2 763 693 - A1



La présente invention concerne de manière générale le domaine de la chimie analytique. La présente invention concerne plus particulièrement un réacteur à échantillons multiples permettant de soumettre simultanément
5 des échantillons de corps réactionnels multiples à des conditions de pression et/ou de température contrôlées.

Plusieurs types de réacteurs ont été utilisés pour soumettre des échantillons de corps réactionnels à des températures et des pressions élevées afin de mettre en
10 oeuvre divers procédés expérimentaux pour des recherches universitaires et des recherches industrielles. Ces procédés comprennent, mais à titre non limitatif, la synthèse de substances nouvelles, des déterminations de stabilité et de compatibilité de phase de diverses substances, des études de
15 pression-volume-température, des déterminations de solubilités de substances, des analyses thermiques différentielles sous haute pression, des mesures de conductivité électrique, des essais de corrosion accélérée, des essais conduits dans des environnements particuliers, la croissance de cristaux
20 dans des milieux neutres ou sous pression et de nombreux tests et simulations géologiques associés à la prévision des caractéristiques de champs pétrolifères.

Les chercheurs en géologie utilisent ces réacteurs pour effectuer des expériences et des recherches en
25 minéralogie, en géochimie, en production de pétrole et de gaz et pour l'étude de la cinétique des réactions de craquage. Ces réacteurs sont utilisés pour exposer des échantillons géologiques à des conditions de pression et de température afin de tester les prévisions théoriques et simuler les
30 résultats de processus géologiques naturels, par exemple la cinétique et les rendements de production de pétrole et de gaz, la cinétique de transformation d'argiles, des interactions fluide-roche, une pyrolyse organique, etc. Ces résultats d'essai constituent une étape essentielle dans
35 l'identification et l'élaboration de ressources économiques

de pétrole et de gaz.

Les dispositifs classiques utilisés pour effectuer ces différentes expériences comprennent des "réacteurs hermétiques froids", des récipients hydrothermiques sous pression, des récipients à chauffage interne et trempe rapide, etc. Les "réacteurs hermétiques froids" ont habituellement une longueur inférieure à 46 cm, avec un diamètre extérieur inférieur à 7,6 cm. Les récipients de réaction haute pression modèles MRA et LRA, disponibles auprès de LECO Corporation, Bellefonte, Pennsylvanie, sont des exemples de réacteurs classiques hermétiques froids. Les vitesses d'élévation de température des échantillons enfermés dans des récipients du type réacteur hermétique froid sont limitées par la masse thermique du récipient puisque la totalité du récipient doit être chauffée. Les "réacteurs hermétiques froids" sont habituellement adaptés à l'utilisation avec des échantillons uniques et nécessitent habituellement un refroidissement rapide de la totalité du récipient de réaction afin de désactiver l'échantillon.

Les récipients hydrothermiques sous pression comprennent les récipients de type Dickson et les récipients résistant à la pression Parr™. Pour des détails supplémentaires concernant les récipients du type Dickson, voir Seyfried, Gordon et Dickson, "A New Reaction Cell for Hydrothermal Solution Equipment", American Mineralogist, Vol. 64, pages 646-649 (1979). Pour des détails supplémentaires concernant les récipients résistant à la pression Parr™, voir Parr Instrument Company 1991 Catalog, 7ème édition, page 105. Les récipients hydrothermiques sous pression sont soumis à la même vitesse d'élévation de température et aux mêmes limitations de désactivation, décrites ci-dessus, que les réacteurs hermétiques froids.

Un récipient à chauffage interne et désactivation rapide est décrit par Holloway, Dixon et Pawley, "An Internally Heated, Rapid-Quench, High-Pressure Vessel", American

Mineralogist, Vol. 77, pages 643-646 (1992). Les récipients à chauffage interne et désactivation rapide, tels que ceux décrits par Holloway et al., permettent un ajustement amélioré de la vitesse d'élévation de température de l'échantillon puisque seul l'espace intérieur du récipient est chauffé, ce qui supprime la nécessité de chauffer la masse totale du récipient proprement dit. Cependant, l'ajustement de la vitesse d'élévation de température pourrait être amélioré davantage s'il existait un contact plus direct ou plus intime entre la source de chaleur et l'échantillon. En outre, le dispositif décrit par Holloway et al. est seulement adapté à l'utilisation avec des échantillons de corps réactionnels distincts.

Les spécialistes de la chimie analytique comprendront aisément que, pour confirmer des prévisions et avoir confiance dans diverses théories, il est nécessaire habituellement que les procédés expérimentaux concernés soient mis en oeuvre de manière répétée. Les répétitions de ces essais peuvent être effectuées aux mêmes pressions et températures, ou bien à des pressions et températures différentes, et, dans les deux cas, pendant diverses périodes de temps. Une limitation usuelle des dispositifs existants lorsque ces expériences ont été effectuées de manière répétée consiste en la conception de ces dispositifs pour fonctionner avec un seul échantillon à une série donnée de conditions de pression-température-temps. Cette limitation a pour résultat des besoins importants de main-d'oeuvre afin de préparer chaque échantillon et chaque expérience individuellement. En outre, les limitations concernant le temps disponible pour l'obtention des résultats désirés peuvent imposer la nécessité de dispositifs d'essai multiples afin d'effectuer de nombreux essais en parallèle plutôt qu'en série.

En conséquence, afin de réduire le temps total requis pour des essais multiples et pour réduire à la fois la main-d'oeuvre et les coûts des dispositifs associés à des

essais multiples, il existe un besoin d'un dispositif permettant d'effectuer simultanément des expériences sur des échantillons multiples tout en faisant varier les conditions de pression, de température et/ou de temps utilisés dans
5 l'essai. La présente invention répond à ce besoin.

La présente invention a pour objet un réacteur permettant de soumettre simultanément des échantillons de corps réactionnels multiples à des conditions contrôlées de pression et de température. De manière caractéristique, le
10 réacteur comprend un récipient résistant à la pression, comprenant à la fois une zone chaude et une zone de désactivation à l'intérieur du récipient où des pressions d'essai allant d'une valeur supérieure à la pression atmosphérique à une valeur inférieure à la pression atmosphérique sont
15 désirées. De la chaleur est fournie à la zone chaude et est évacuée de la zone de désactivation par n'importe quel procédé usuel connu de l'homme de l'art et utilisé classiquement dans les réacteurs à l'échelle du laboratoire. Un portoir d'échantillon capable de porter deux ou plus de deux
20 échantillons est monté à l'intérieur de la zone chaude. Le réacteur de la présente invention est équipé également d'un mécanisme de libération d'échantillon permettant de déplacer sélectivement des échantillons distincts du portoir à la zone de désactivation à un ou plusieurs moments déterminés par
25 l'opérateur. Cependant, le réacteur ne nécessite pas dans tous les cas la présence d'un récipient résistant à la pression. Lorsqu'un fonctionnement sous la pression atmosphérique est désiré, le portoir d'échantillon peut être fixé à un support avec la source de chaleur appliquée directement
30 au portoir d'échantillon, et l'évacuation sélective des échantillons hors du portoir permet aux échantillons de refroidir à température ambiante ou d'être placés dans un autre milieu de refroidissement.

Dans une forme de réalisation préférée, la zone
35 chaude est située au-dessus de la zone de désactivation. Des

échantillons de corps réactionnels multiples peuvent être maintenus dans des chambres distinctes dans le portoir par un support de maintien d'échantillon. Les chambres sont disposées suivant un motif circulaire autour d'un axe généralement vertical. Le portoir et le support sont montés de manière à permettre la rotation l'un par rapport à l'autre autour de cet axe. Le support est muni d'au moins un orifice qui s'aligne successivement avec chacune des chambres au cours de cette rotation, en permettant aux différents échantillons de
5 tomber du portoir jusqu'à la zone de désactivation.
10

D'autres caractéristiques et avantages de la présente invention ressortiront de la description détaillée qui va suivre, faite en regard des dessins annexés sur lesquels :

15 La figure 1 est un dessin en coupe transversale verticale représentant une forme de réalisation de la présente invention dans laquelle un récipient résistant à la pression est utilisé pour soumettre l'échantillon à une pression régulée.

20 La figure 2 est un dessin en coupe transversale verticale représentant une autre forme de réalisation de la présente invention dans laquelle l'échantillon est exposé à la pression atmosphérique.

La figure 3A est un dessin en perspective en
25 coupe représentant une vue agrandie du portoir d'échantillon et des éléments apparentés pour les formes de réalisation représentées sur les figures 1 et 2.

La figure 3B représente une forme préférée de réalisation d'une enceinte d'échantillon pour la forme de
30 réalisation représentée sur les figures 1 et 2.

Les figures 1, 2, 3A et 3B ne sont pas représentées à l'échelle et sont incluses seulement pour illustrer la configuration générale des composants pour les diverses formes de réalisation de la présente invention. L'homme de
35 l'art reconnaîtra que des modifications des dimensions et le

remplacement de composants particuliers par des composants ayant d'autres configurations, ayant essentiellement la même fonction, sont inclus dans le cadre de la présente invention. Dans la mesure où la description détaillée suivante est
5 spécifique d'une forme de réalisation particulière ou d'une utilisation particulière de la présente invention, cette description est destinée à être seulement illustrative et ne doit pas être considérée comme limitant le cadre de l'invention. Au contraire, elle est destinée à couvrir toutes les
10 variantes, toutes les modifications et tous les équivalents qui peuvent être inclus dans l'esprit et le cadre de la présente invention, suivant la définition fournie par les revendications annexées.

Le réacteur résistant à la pression, à échantil-
15 lons multiples, de la présente invention, représenté sur les figures 1, 2, 3A et 3B et décrit dans le texte ci-dessous, est apte à l'utilisation dans des procédés ou expériences à effectuer sur des échantillons d'essai multiples.

La figure 1 représente une forme de réalisation
20 de la présente invention. Un récipient résistant à la pression 1 définit une cavité intérieure 2. L'obturation et le joint résistant à la pression du récipient sont réalisés par des moyens bien connus et classiques. Dans la forme de réalisation représentée sur la figure 1, le récipient
25 résistant à la pression 1 consiste en un corps 1A et une tête 1B. Le joint résistant à la pression est maintenu en plaçant un joint d'étanchéité 1C entre le corps 1A et la tête 1B et en fixant la tête 1B au corps 1A par des moyens classiques. Dans cette forme de réalisation, tous les composants du
30 réacteur qui doivent passer à travers la paroi du récipient sont munis de trous d'entrée, munis de joints hermétiques, à travers la tête 1B. Des informations supplémentaires concernant le récipient résistant à la pression 1 de cette forme de réalisation et d'autres récipients convenables similaires
35 peuvent être trouvés dans Parr Instrument Company 1991

Catalog, 7ème édition, page 105. Le récipient 1 représenté sur la figure 1 est un récipient Parr Instrument Company modèle 243HC5 fabriqué à partir de Hastelloy™ C-276. Cependant, le récipient 1 peut être fabriqué à partir de n'importe
5 quelle matière pouvant résister à la température et la pression de fonctionnement requises. Dans d'autres formes de réalisation de la présente invention, la tête 1B peut être située à la partie inférieure plutôt qu'à la partie supérieure du récipient 1, ou bien le récipient 1 peut consister
10 en deux moitiés pratiquement similaires en forme de godets jointes l'une à l'autre de n'importe quelle manière convenable. En outre, certains ou la totalité des trous d'entrée du récipient peuvent passer à travers le corps 1A du récipient plutôt qu'à travers la tête 1B. La cavité intérieure 2
15 représentée contient deux régions à températures distinctes, consistant en une zone chaude 3 et une zone de désactivation 4. Dans la forme de réalisation représentée, la zone chaude 3 est située au-dessus de la zone de désactivation 4.

La pression est engendrée et maintenue dans le
20 récipient résistant à la pression par n'importe quel appareil classique pour la régulation de pression. De tels moyens pour engendrer et maintenir une pression sont bien connus de l'homme de l'art et sont spécifiés sur la base de leur aptitude à engendrer les pressions requises pour une appli-
25 cation donnée. Pour une application nécessitant une pression supérieure à la pression atmosphérique, un dispositif de compression classique tel que, mais à titre non limitatif, un dispositif de compression auxiliaire à gaz tel que le modèle PS-30 représenté dans High Pressure Equipment Company,
30 Catalog N° 9000, à la page 62 est utilisé. Habituellement, la pression est transférée du dispositif de compression à gaz au récipient à travers un ensemble de tubulures souples et valves classique (non représenté). Dans une autre forme de réalisation, la pression de la cavité intérieure 2 est
35 ajustée à une valeur égale ou inférieure à la pression

atmosphérique. Il est possible de faire fonctionner le récipient 1 sous vide par n'importe quel dispositif classique utilisé pour maintenir un système clos à une pression égale ou inférieure à la pression atmosphérique. Dans le cas où le
5 fonctionnement à la pression atmosphérique est désiré, le récipient 1 peut être clos hermétiquement à la pression atmosphérique sans autre moyen extérieur de régulation de pression, ou bien le récipient 1 peut être purgé par contact direct avec l'atmosphère. Pour des applications dans les-
10 quelles un fonctionnement sous la pression atmosphérique est désiré, la conception du récipient 1 est sans importance puisque la fonction du récipient 1 dans le cas est principalement une fonction de support structural.

Dans la forme de réalisation représentée sur la
15 figure 1, un portoir d'échantillon 5 est monté en position fixe à l'intérieur de la zone chaude 3. Le portoir d'échantillon 5 contient une pluralité de chambres d'échantillons 6 disposées suivant un motif circulaire autour d'un axe de rotation 7 généralement vertical. Les chambres 6, dans la
20 forme de réalisation de la présente invention représentée sur la figure 1, sont des trous cylindriques ayant généralement des axes longitudinaux verticaux. Un support d'échantillon 8 est présent pour empêcher les échantillons de tomber hors du portoir d'échantillon 5 dans la zone de désactivation 4. Sur
25 la figure 1, le support 8 est représenté sous forme d'une plaque plate montée de manière à pouvoir tourner à proximité immédiate d'une surface plate sur la face inférieure du portoir d'échantillon 5. Le portoir d'échantillon 5 et le support 8 représentés sur les figures 1 et 3A sont fabriqués
30 sur mesure aux dimensions désirées à partir d'une barre en acier inoxydable de qualité 316L. Cependant, ces composants peuvent être fabriqués à partir de n'importe quelle matière capable de résister à la température requise de fonctionnement du réacteur.

Le portoir d'échantillon 5, dans la forme d réalisation représentée sur la figure 1, est fixé rigidement à la tête de récipient 1B et comporte un alésage continu 9 coaxial avec l'axe de rotation 7 s'étendant de la partie inférieure du portoir 5 jusqu'à la tête de récipient 1B. Un trou d'entrée 10 dans la tête 1B du récipient 1 forme une voie de passage continue avec l'alésage 9. Une tige de contrôle 11 passe à travers cette voie de passage continue. L'extrémité inférieure de la tige de contrôle 11 est fixée de manière rigide au support 8. La tige de contrôle 11 est maintenue en place longitudinalement, mais avec possibilité de rotation autour de l'axe de rotation 7 par un ensemble de roulements 12 placé entre le support 8 et la surface inférieure du portoir 5. Dans la forme de réalisation représentée sur la figure 1, le positionnement de l'ensemble de roulements 12 entre la surface inférieure du portoir 5 et la surface supérieure du support est particulièrement apprécié afin de permettre la rotation libre de la tige de contrôle 11 lors du fonctionnement du réacteur à des pressions élevées. L'ensemble de roulements 12 peut être construit à partir d'un métal, d'une matière céramique ou de n'importe quelle matière ou association de matières pouvant résister à la tension et la température requises pour les conditions choisies de fonctionnement maximal du réacteur. Dans cette forme de réalisation, les roulements utilisés sont des billes de matière céramique (alumine) de qualité C25 de 3,2 mm de diamètre, disponible auprès de Hoover Precision Products, Sault Ste. Marie, Michigan. Un joint d'étanchéité 13 est utilisé pour empêcher une perte de pression entre la tige de contrôle 11 et le trou d'entrée 10. L'extrémité supérieure de la tige de contrôle est fixée à une unité de commande de rotation de support 14. L'unité de commande de rotation 14 est portée en position fixe par rapport au récipient résistant à la pression 1 et peut être soumise à un fonctionnement manuel ou, comme dans une forme de réalisation préférée, peut

être commandé de manière automatisée par un système d'entraînement à moteur électrique fixé à l'extrémité supérieure de ladite tige de commande 11. De manière idéale, le système d'entraînement à moteur est commandé par une
5 minuterie (non représentée) sans la nécessiter d'une intervention humaine au cours de la totalité de l'essai, ce qui permet de désactiver des échantillons distincts à des temps préalablement choisis et différents. Lors de la rotation de la plaque de support 8 par l'unité de commande de rotation 14,
10 un trou 15 dans la plaque de support s'aligne successivement avec chacune des chambres 6 du portoir. Le trou 15 dans la plaque de support a des dimensions permettant à des échantillons distincts placés à l'intérieur des chambres de portoir 6 de tomber dans la zone de désactivation 4 lorsque le trou
15 et la chambre correspondants sont alignés. La tige de commande 11, représentée sur les figures 1 et 3A, est fabriquée sur mesure aux spécifications désirées à partir d'une barre d'acier inoxydable de qualité 316L. Cependant, la tige 11 peut être produite à partir de n'importe quelle
20 matière pouvant résister à la température de fonctionnement choisie requise du réacteur.

La température des échantillons placés dans les chambres 6 dans le portoir d'échantillon 5 est maintenue par n'importe quel dispositif de chauffage connu. De préférence,
25 le dispositif de chauffage s'adapte à l'intérieur du récipient et entoure dans la mesure du possible le portoir 5. Dans la forme de réalisation représentée sur la figure 1, le dispositif de chauffage est un élément chauffant à câble enroulé 16 entourant la surface extérieure du portoir 5. Des
30 éléments chauffants à câbles enroulés convenables comprennent, mais à titre non limitatif, des éléments chauffants à câbles enroulés produits sur mesure et également des éléments chauffants à bande disponibles auprès de Watlow Electric Manufacturing Company, St. Louis, Missouri et décrits dans
35 Watlow Electric Manufacturing Company, Catalogue COR-HPC-65

(éléments chauffants à câbles aux pages 49 à 56 et éléments chauffants à bandes aux pages 15 à 48). Dans une autre forme de réalisation, de la chaleur peut également être fournie aux échantillons par chauffage par impédance (c'est-à-dire en utilisant le portoir proprement dit comme source de chaleur). De préférence, la régulation de la température des échantillons est améliorée davantage en entourant dans la mesure du possible l'extérieur de l'ensemble du portoir 5, du support 8 et de l'élément chauffant 16 avec un isolant 17. La régulation de température des échantillons peut être améliorée davantage en installant des thermocouples de contrôle d'échantillons 18 à l'intérieur des chambres d'échantillons 6 pour un contrôle à rétro-action du dispositif de chauffage 16. Des thermocouples convenables comprennent, mais à titre non limitatif, des thermocouples sous gaine, modèle KMQSS-040-U-24, disponibles auprès de Omega Engineering Company, Stamford, Connecticut et décrits dans Omega Engineering Company, Catalog Vol. 27, page A10 (1989). Il est possible d'utiliser n'importe quel moyen convenable pour installer les thermocouples de contrôle d'échantillons 18 à travers la paroi du récipient et contrôler les températures des échantillons depuis l'extérieur du récipient 1. Ces moyens doivent être capables de maintenir l'intégrité de pression du récipient 1.

Des caractéristiques ou paramètres supplémentaires peuvent être pris en considération et ajoutés à la présente forme de réalisation, seuls ou en n'importe quelle association, pour répondre à des critères d'essais spécifiques comprenant, mais à titre non limitatif : la réduction au minimum de la masse thermique du récipient 1 ; la réduction au minimum de la masse thermique du portoir d'échantillon 5 ; et la réduction au minimum de l'intervalle ou de l'espace vide entre l'ensemble formé du portoir 5, du support 8, de l'élément chauffant 16 et de l'isolant 17 et les parois du récipient 1. Chacune de ces caractéristiques contribue à

l'aptitude de la présente invention à parvenir à de plus grandes vitesses de chauffage régulé. De préférence, la présente invention permet le chauffage d'échantillons à des vitesses allant de moins de 1°C par minute à plus de 50°C par minute. Bien que n'importe quel milieu qui n'entrave pas le fonctionnement du four puisse être utilisé pour mettre sous pression la cavité 2 du récipient, l'hélium gazeux est particulièrement apprécié en raison de sa charge réduite sur l'élément chauffant 16, comparativement aux autres milieux classiques tels que l'argon gazeux. Les gaz qui réduisent la charge sur l'élément chauffant sont préférés lorsque de plus hautes températures de fonctionnement sont désirées.

La régulation de la température de la zone de désactivation 4 est maintenue par n'importe quel système de refroidissement connu. Des systèmes de refroidissement convenables comprennent, mais à titre non limitatif, un refroidissement simple par air en déplaçant les échantillons à une distance de l'association du support 5 et de l'élément chauffant 16, l'immersion d'une partie du récipient dans un milieu de refroidissement, ou l'insertion dans la cavité de récipient 2 au niveau de la zone de désactivation 4 d'un dispositif d'échange de chaleur à boucle fermée. Tous ces systèmes sont bien connus de l'homme de l'art et sont indiqués sur la base de leur aptitude à engendrer la vitesse de refroidissement désirée. Le système de refroidissement utilisé dans la forme de réalisation représentée sur la figure 1 comprend l'immersion de la partie inférieure du récipient 1 dans un bain d'eau 19. De préférence, la température de la zone de désactivation 4 est contrôlée par un thermocouple de zone de désactivation 20, ce qui permet une rétro-action du contrôle de la température du bain 19. Des thermocouples convenables comprennent, mais à titre non limitatif, les thermocouples à gaines mentionnés ci-dessus. Il est possible d'utiliser n'importe quel moyen convenable pour installer le thermocouple de zone d désactivation 20 à

travers la paroi du récipient et contrôler la température de la zone de désactivation 4 depuis l'extérieur du récipient 1. Pour certaines applications de la présente invention, un refroidissement particulièrement rapide des échantillons ou des vitesses de désactivation particulièrement grandes sont
5 préférés. La vitesse d'évacuation de chaleur lors des échantillons est accrue en abaissant la température de la zone de désactivation 4. La zone de désactivation 4 est maintenue avantageusement à une température égale ou inférieure à la température ambiante, de préférence égale ou
10 inférieure à 15°C.

La figure 2 représente une autre forme de réalisation de la présente invention dans laquelle le récipient résistant à la pression est omis et les capsules
15 d'échantillons sont exposées à des conditions de pression ambiante. Les numéros de référence utilisés sur la figure 1 sont utilisés pour identifier les mêmes caractéristiques sur la figure 2. Une structure de support 24 sert de support direct au dispositif de chauffage 16 et au portoir d'échan-
20 tillon 5. La structure de support 24 peut être une structure à l'air libre de la manière représentée sur la figure 2 ou une enceinte totale ou partielle. La fonction principale de la structure de support 24 consiste à servir de support aux autres parties de la présente invention en les maintenant en
25 position de la manière décrite ci-dessous. Deux régions à température distinctes sont également présentes dans une forme de réalisation représentée sur la figure 2. La zone chaude 3 est également située au-dessus de la zone de désactivation 4.

30 Dans la forme de réalisation représentée sur la figure 2, le portoir d'échantillon 5 est monté dans la structure de support 24 à une position fixe à l'intérieur de la zone chaude 3. La configuration et la fonction du portoir d'échantillon 5, des chambres d'échantillons 6, de l'ensemble
35 d'roulements 12, du dispositif de chauffage 16, de l'isolant

17, de la tige de commande 11, de l'unité de commande de rotation 14, du trou de plaque de support 15 et du support d'échantillon 8 sont pratiquement identiques à la configuration décrite ci-dessus et représentée sur les figures 1 et 3A. La principale différence par rapport à la forme de réalisation représentée sur la figure 1 consiste en la fixation de manière rigide du portoir d'échantillon 5, dans la forme de réalisation représentée sur la figure 2, à la structure de support 24 au lieu d'un récipient résistant à la pression. L'unité de commande de rotation 14 peut être montée directement sur la structure de support 24 ou, dans le cas contraire, peut être portée dans une position fixe par rapport à la structure de support 24. Le support d'échantillon 8 est porté par connexion à l'unité de commande de rotation 14 par la tige de commande 11. Il n'est pas nécessaire que l'ensemble de roulements 12 soit aussi résistant que dans la forme de réalisation de la figure 1 en raison de l'absence de poussée axiale induite par la différence entre la pression interne et la pression externe. Dans d'autres formes de réalisation, l'ensemble de roulements 12 peut être omis totalement. De préférence, un thermocouple de contrôle d'échantillon 18 et un thermocouple de zone de désactivation 20 sont également inclus de la manière représentée.

Dans cette forme de réalisation, la zone de désactivation 4 renferme un réceptacle de refroidissement 25. Le réceptacle de refroidissement 25 peut être construit à partir d'une grille métallique pour rendre maximale l'exposition d'un échantillon éjecté à l'air ambiant ou peut être constitué d'un godet métallique solide, vide ou contenant un milieu de refroidissement choisi. Le réceptacle de refroidissement 25 peut être à n'importe quelle distance du portoir d'échantillon 5 et peut être en outre mobile, automatiquement ou manuellement, pour permettre le transport de l'échantillon éjecté à un emplacement distant de l'ensemble de structure de support 24 et de portoir d'échantillon 5 pour un traitement

supplémentaire de l'échantillon. De préférence, la température de la zone de désactivation 4 est contrôlée par un thermocouple de zone de désactivation 20, ce qui permet une rétro-action du contrôle de la température du réceptacle de refroidissement 25. Des thermocouples convenables comprennent, mais à titre non limitatif, les thermocouples à gaines mentionnés ci-dessus. Pour certaines applications de la présente invention, un refroidissement particulièrement rapide des échantillons ou des vitesses de désactivation particulièrement grandes sont préférés. La vitesse d'évacuation de chaleur hors des échantillons peut être accrue en abaissant la température de la zone de désactivation 4. La zone de désactivation 4 est maintenue avantageusement à une température égale ou inférieure à la température ambiante, de préférence égale ou inférieure à 15°C.

La figure 3A est une vue agrandie en perspective de l'assemblage du portoir d'échantillon 5, de l'élément chauffant 16, de l'isolant 17, du support 8, de la tige de commande 11 et de l'ensemble de roulements 12 représenté sur les figures 1 et 2. La réduction au minimum de l'espace libre entre les échantillons et les faces des chambres 6 permet de maintenir l'échantillon à une température plus uniforme le long de cet échantillon. Dans une forme de réalisation préférée, l'homogénéité de la température de l'échantillon est rendue maximale en entourant le godet d'échantillon 23 dans une enceinte en laiton 21 et en coiffant l'enceinte 21 avec un bouchon isolant en verre 22, de la manière représentée sur la figure 3B. Le godet d'échantillon 23 peut être produit à partir de n'importe quelle matière pouvant résister aux conditions de l'expérience, sans contaminer l'échantillon qu'elle renferme. Les métaux nobles sont chimiquement inertes et déformables, en transmettant la pression au contenu du godet 23. Les expériences effectuées sous la pression atmosphérique peuvent utiliser des tubes en silice fondus comme godets d'échantillons, outre l'utilisation de godets en

métaux nobles.

Pour des formes de réalisation de la présente invention avec ou sans un récipient résistant à la pression, l'homme de l'art reconnaîtra que d'autres configurations de portoirs et de supports pourraient être conçues pour faire tomber sélectivement des échantillons distincts dans la zone de désactivation 4. Par exemple, dans une autre forme de réalisation, le support d'échantillon tourne autour d'un axe horizontal. Les chambres d'échantillons sont des fentes
5 ouvertes sur la surface cylindrique extérieure du portoir. Le support de maintien d'échantillon est une plaque incurvée montée en position fixe et mise sous une forme permettant de s'adapter étroitement au diamètre extérieur du portoir d'échantillon. Dans cette forme de réalisation, le support
10 comporte un trou en forme de fente qui s'aligne successivement avec les fentes dans le portoir lors de la rotation de ce portoir autour de son axe horizontal de rotation, ce qui permet aux échantillons distincts de tomber dans la zone de désactivation.

20 Diverses configurations et orientations spatiales des composants permettent à un mécanisme de libération d'échantillon de déplacer sélectivement et indépendamment des échantillons de corps réactionnels distincts dudit portoir à ladite zone de désactivation. Le portoir d'échantillon
25 comprend au moins deux chambres convenables pour porter des échantillons, de préférence plus de deux chambres, disposées suivant un schéma tel que le mouvement du support de maintien d'échantillon par rapport au portoir d'échantillon permettent à un orifice de portoir de s'aligner avec chacune des
30 chambres à un certain point dans le trajet du mouvement relatif du portoir et du support. De préférence, le schéma est de configuration circulaire et le mouvement relatif est une rotation des deux composants l'un par rapport à l'autre autour d'un axe de rotation commun. Lorsque l'orifice n'est
35 pas aligné avec une chambre donnée, le support empêche un

échantillon présent dans cette chambre de tomber dans la zone de désactivation. L'orifice dans le support a n'importe quelle forme convenable (par exemple une fente, un trou circulaire, une entaille, entre autres), sous réserve que le mouvement relatif du portoir et du support provoque l'alignement de l'orifice avec chacune des chambres à un certain point lors du mouvement et que l'alignement de l'orifice avec la chambre permette à l'échantillon présent dans cette chambre de tomber dans la zone de désactivation.

Les formes de réalisation précitées concernent des réacteurs dans lesquels des échantillons de la même matière sont soumis aux mêmes conditions de température et de pression et des échantillons distincts peuvent être désactivés à des temps différents. Ces temps peuvent représenter des points le long d'un profil d'élévation de température, les échantillons étant désactivés successivement à des températures plus élevées. Dans une autre forme de réalisation de la présente invention, des échantillons de matières différentes sont soumis aux mêmes conditions de température et de pression, mais tous les échantillons sont désactivés en même temps. La présente invention comprend également des variantes des formes de réalisation précitées, dans lesquelles est effectuée la désactivation simultanée de plus d'un échantillon, mais non de la totalité de ces échantillons. Dans toutes les formes de réalisation, les conditions de pression et de température peuvent être constantes, peuvent présenter des vitesses de variation choisies préalablement, ou bien une association de ces caractéristiques peut être utilisée.

De la manière décrite ci-dessus, la présente invention répond au besoin d'un dispositif permettant d'effectuer simultanément des expériences sur des échantillons multiples tout en faisant varier les conditions de pression, de température et de temps. Il peut être entendu que la présente invention ne doit pas être limitée indûment

à la description précédente qui a été indiquée à des fins d'illustration. Diverses modifications et variantes de la présente invention apparaîtront à l'homme de l'art sans s'écarter du cadre véritable de la présente invention tel

5 qu'il est défini dans les revendications suivantes. Par exemple, il est possible de concevoir un réacteur dans lequel la zone chaude est située à côté de la zone de désactivation au lieu d'être située au-dessus de cette zone. Dans un tel réacteur, un certain moyen autre que la gravité serait requis

10 pour déplacer sélectivement et individuellement les échantillons de la zone chaude à la zone de désactivation.

REVENDICATIONS

1. Réacteur (1) destiné à soumettre simultanément une pluralité d'échantillons de corps réactionnels à des conditions de température contrôlées, caractérisé en ce qu'il
5 comprend :

- a) une structure de support entourant une région comprenant une zone chaude (3) et une zone de désactivation (4) ;
- b) un dispositif de chauffage pour ladite zone
10 chaude ;
- c) un système de refroidissement pour ladite zone de désactivation ;
- d) un portoir d'échantillon (5) monté à l'intérieur de ladite zone chaude (3) et apte à maintenir
15 une pluralité d'échantillons de corps réactionnels ; et
- e) un mécanisme de libération d'échantillon permettant de déplacer sélectivement et indépendamment des échantillons de corps réactionnels distincts
20 dudit portoir (5) à ladite zone de désactivation (4).

2. Réacteur suivant la revendication 1, caractérisé en ce que la zone chaude est située au-dessus de la zone de désactivation et le portoir d'échantillon comprend
25 une pluralité de chambres, aptes à renfermer des échantillons et disposées suivant un motif circulaire, et le mécanisme de libération d'échantillon comprend un support comportant un orifice, ledit portoir d'échantillon et ledit support étant montés l'un par rapport à l'autre de telle sorte que :

- 30 a) ledit portoir et ledit mécanisme de libération d'échantillon puissent être soumis à une rotation l'un par rapport à l'autre autour d'un axe commun qui passe à travers le centre dudit motif circulaire ;

- b) ledit support soit capable de retenir les échantillons placés à l'intérieur desdites chambres ;
et
- 5 c) la rotation dudit portoir et dudit mécanisme de libération d'échantillon l'un par rapport à l'autre provoquent le positionnement successif dudit orifice par rapport à chacune desdites chambres de telle sorte que les échantillons retenus dans lesdites chambres se déplacent
- 10 dudit portoir à ladite zone de désactivation.
3. Réacteur suivant la revendication 2, caractérisé en ce que :
- a) le portoir est essentiellement cylindrique ;
- b) l'axe est essentiellement vertical ;
- 15 c) les chambres sont des trous cylindriques parallèles à cet axe ; et
- d) le support est une plaque et l'orifice est un trou au moins aussi grand que lesdits trous cylindriques.
- 20 4. Réacteur suivant la revendication 3, caractérisé en ce que le dispositif de chauffage est un dispositif de chauffage à câble enroulé, placé autour du portoir.
5. Réacteur suivant la revendication 2, caractérisé en ce que le mécanisme de libération d'échantillon
- 25 comprend en outre une tige de commande montée, de manière à pouvoir tourner, en position coaxiale avec l'axe, et fixée à une extrémité audit support et à l'autre extrémité à un élément d'entraînement par moteur électrique commandé par une minuterie.
- 30 6. Réacteur suivant la revendication 1, caractérisé en ce que la structure de support consiste en un récipient définissant une cavité et entourant la zone chaude et la zone de désactivation, ledit réacteur comprenant en outre un appareil de régulation de pression apte à l'ajuste-
- 35 ment de la pression dans la cavité.

7. Réacteur suivant la revendication 6, caractérisé en ce que l'appareil de régulation de pression est un système de compression à gaz.

5 8. Réacteur suivant la revendication 6, caractérisé en ce que le système de refroidissement comprend essentiellement l'immersion de la portion du réacteur consistant en la zone de désactivation dans un bain d'eau.

10 9. Réacteur pour soumettre simultanément une pluralité d'échantillons de corps réactionnels à des conditions de pression et de température contrôlées, caractérisé en ce qu'il comprend :

15 a) un récipient résistant à la pression, définissant une cavité comprenant une zone chaude et une zone de désactivation, ladite zone chaude étant située essentiellement au-dessus de ladite zone de désactivation ;

b) un système de compression à gaz connecté par un tuyau souple audit récipient ;

20 c) un portoir d'échantillon essentiellement cylindrique, monté à l'intérieur de ladite zone chaude et comprenant une pluralité de trous cylindriques pratiquement parallèles à cet axe et disposés suivant un motif circulaire, chaque trou étant apte à renfermer des échantillons distincts ;

25 d) un support d'échantillon comprenant une plaque comportant un trou au moins aussi grand que lesdits trous cylindriques dans ledit portoir, ladite plaque étant montée par rapport audit portoir de telle sorte que

30 i) ladite plaque puisse être soumise à une rotation par rapport au portoir autour d'un axe commun essentiellement vertical qui passe à travers le centre dudit motif circulaire,

- ii) ladite plaque soit capable de retenir les échantillons placés à l'intérieur desdites chambres, et
 - iii) la rotation de ladite plaque provoque le positionnement successif dudit trou de cette plaque par rapport à chacune des chambres de telle sorte que les échantillons retenus dans lesdites chambres tombent dudit portoir à ladite zone de désactivation ;
- 5
- 10 e) un élément chauffant à câble enroulé, autour dudit portoir, pour fournir de la chaleur auxdites chambres d'échantillons ; et
 - f) un bain d'eau pour le refroidissement de ladite zone de désactivation en immergeant essentiellement la portion du réacteur consistant en la zone de désactivation dans ledit bain d'eau.
- 15
10. Réacteur suivant la revendication 9, caractérisé en ce qu'il comprend en outre un élément d'entraînement par moteur électrique commandé par une minuterie pour
- 20 déplacer automatiquement des échantillons de la zone chaude à la zone de désactivation à des temps choisis préalablement.
11. Réacteur pour soumettre simultanément une pluralité d'échantillons de corps réactionnels à des conditions de température contrôlées sous la pression atmosphérique, caractérisé en ce qu'il comprend :
- 25
- a) un portoir d'échantillon monté sur une structure de support et apte à porter une pluralité d'échantillons de corps réactionnels ;
 - b) un dispositif de chauffage pour ledit portoir d'échantillon et n'importe quels échantillons de corps réactionnels portés dans ledit portoir d'échantillon ;
 - c) un mécanisme de libération d'échantillons pour déplacer sélectivement et indépendamment des
- 30
- 35 échantillons de corps réactionnels distincts

- hors dudit portoir d'échantillon ; et
- d) un système de refroidissement pour lesdits échantillons de corps réactionnels après leur enlèvement hors dudit portoir d'échantillon.
- 5 12. Réacteur suivant la revendication 11, caractérisé en ce que le portoir est situé au-dessus du système de refroidissement et le portoir d'échantillons comprend une pluralité de chambres, aptes à maintenir des échantillons et disposées suivant un motif circulaire, et le mécanisme de
- 10 libération d'échantillon comprend un support comportant un orifice, ledit portoir d'échantillon et ledit support étant montés l'un par rapport à l'autre de telle sorte que :
- a) le portoir et le mécanisme de libération d'échantillon puissent être soumis à une rota-
- 15 tion l'un par rapport à l'autre autour d'un axe commun qui passe à travers le centre dudit motif circulaire ;
- b) le support soit capable de retenir les échantillons placés à l'intérieur desdites chambres ; et
- 20 c) la rotation du portoir et du mécanisme de libération d'échantillon l'un par rapport à l'autre provoque le positionnement successif de l'orifice par rapport à chacune des chambres de telle sorte que les échantillons retenus dans lesdites
- 25 chambres tombent du portoir à la zone de désactivation.
13. Réacteur suivant la revendication 12, caractérisé en ce que :
- a) le portoir est essentiellement cylindrique ;
- 30 b) l'axe est essentiellement vertical ;
- c) les chambres sont des trous cylindriques parallèles à cet axe ; et
- d) le support consiste en une plaque et l'orifice consiste en un trou au moins aussi grand que
- 35 lesdits trous cylindriques.

14. Réacteur suivant la revendication 13, caractérisé en ce que le dispositif de chauffage est un dispositif de chauffage à câble enroulé, autour du portoir.

5 15. Réacteur suivant la revendication 12, caractérisé en ce que le mécanisme de libération d'échantillon comprend en outre une tige de commande montée, de manière à pouvoir tourner, coaxialement avec l'axe et fixée à une extrémité au support et à l'autre extrémité à un élément d'entraînement à moteur électrique commandé par une
10 minuterie.

1/3

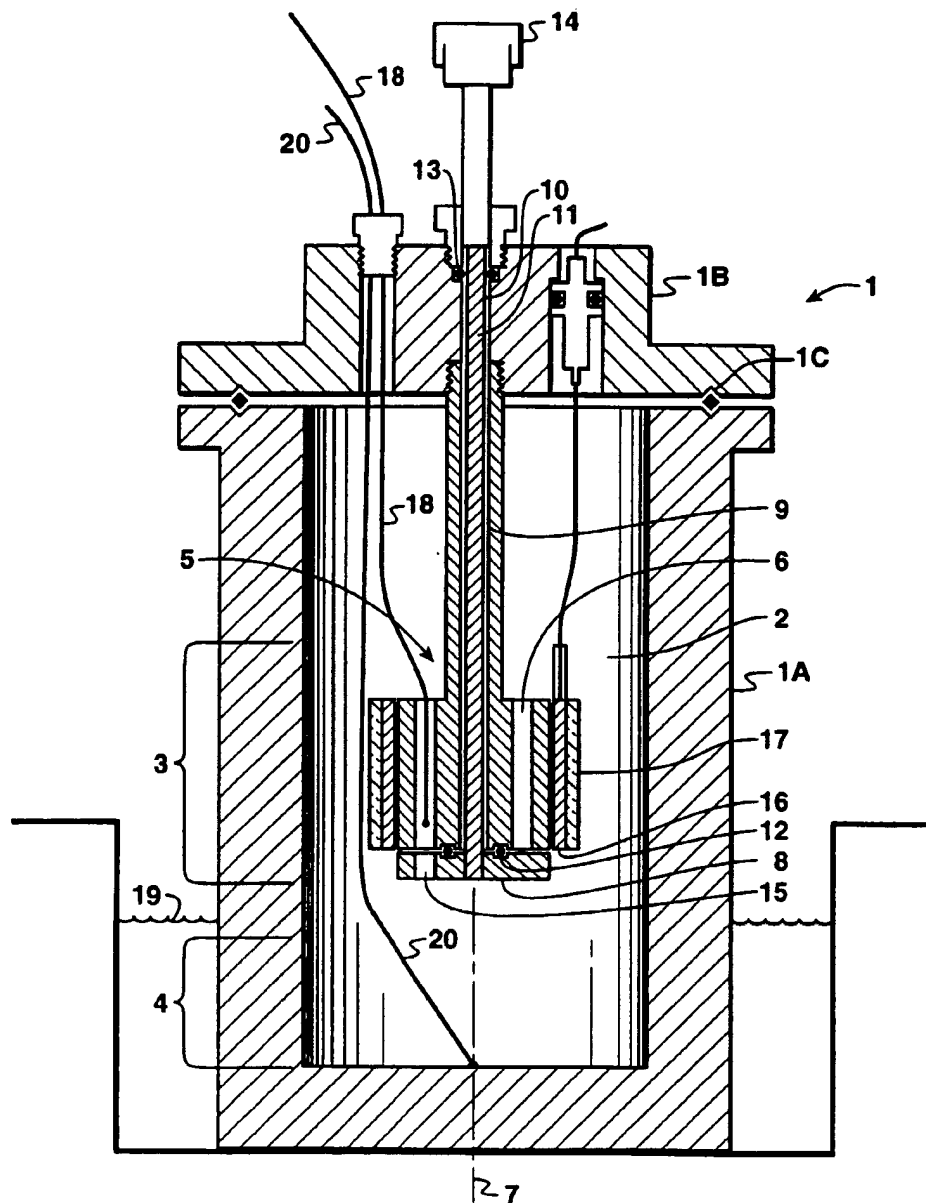
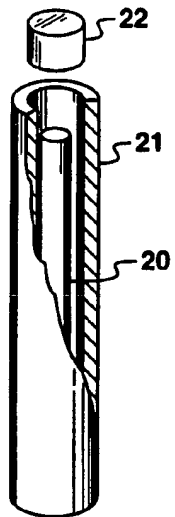
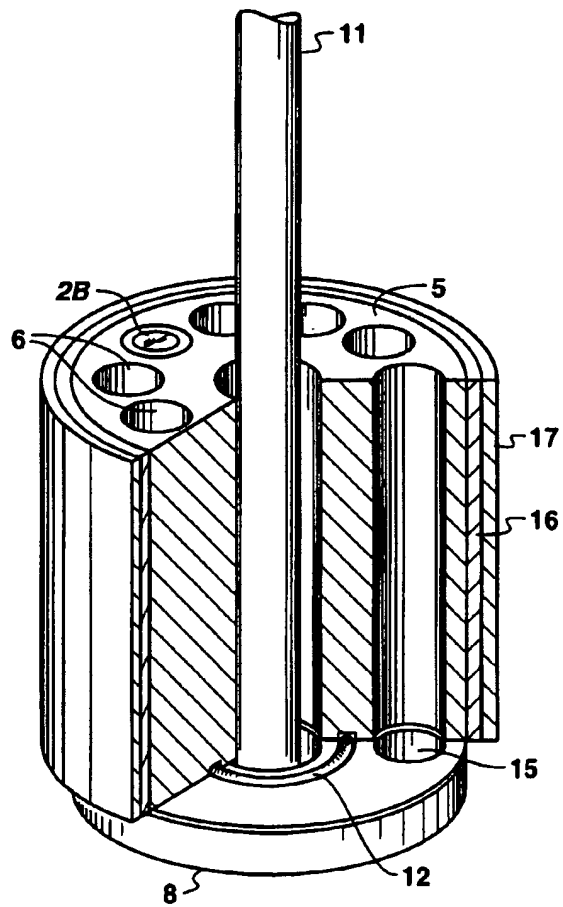


FIG. 1

2/3

**FIG. 2B****FIG. 2A**

3/3

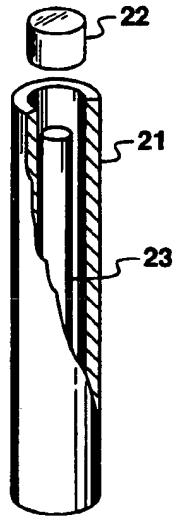


FIG. 3B

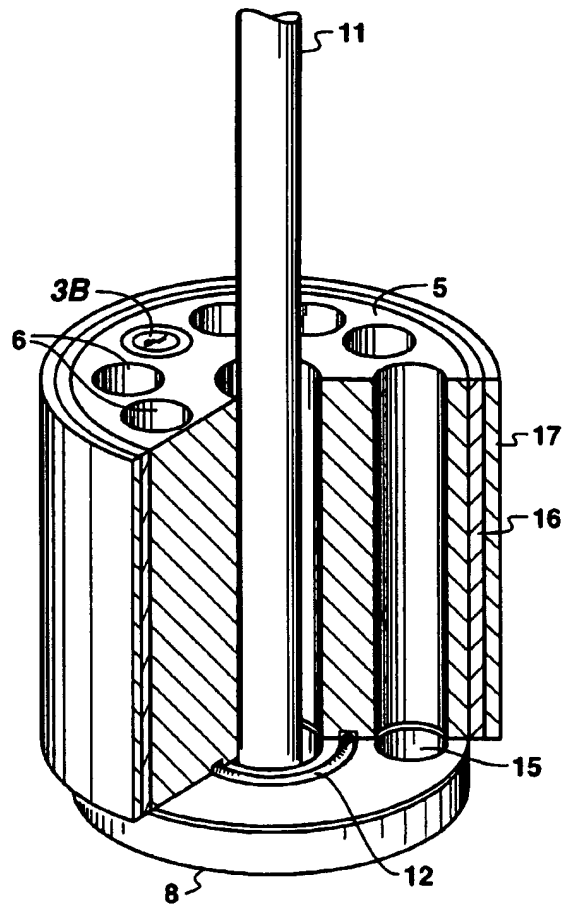


FIG. 3A